

**This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-283271

(43)公開日 平成6年(1994)10月7日

(51)Int.Cl.⁵

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

H 05 B 33/26

33/22

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 12 頁)

(21)出願番号 特願平5-68925

(22)出願日 平成5年(1993)3月26日

(71)出願人 000006747

株式会社リコー

東京都大田区中馬込1丁目3番6号

(72)発明者 安達 千波矢

東京都大田区中馬込1丁目3番6号 株式会社リコー内

(72)発明者 斎藤 省吾

福岡県中央区築院4丁目1番18号

(72)発明者 筒井 哲夫

福岡県春日市紅葉ヶ丘8丁目66番

(72)発明者 高田 徳幸

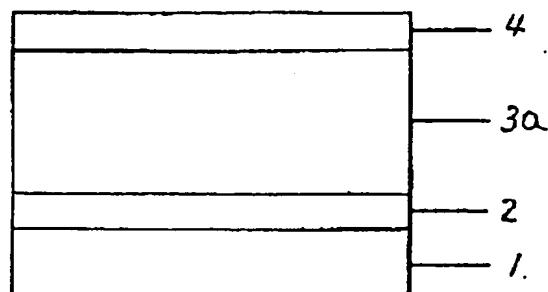
福岡県大野城市白木原1丁目11番4号

(54)【発明の名称】 有機電界発光素子

(57)【要約】

【目的】 発光スペクトルの形状、発光スペクトルの発光ピーク位置の制御、発光面からの発光分布の制御に優れた有機電界発光素子を提供する。

【構成】 少なくとも陽極、1層又は複数層の有機化合物層、陰極の順で構成されている有機電界発光素子において、前記陽極及び陰極が光反射能を有し、光共振器構造を有する有機電界発光素子である。



【特許請求の範囲】

【請求項1】少なくとも陽極、1層または複数層の有機化合物層、陰極の順で構成されている有機電界発光素子において、前記陽極及び陰極が光反射能を有し、光共振器構造を有することを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項2】1層又は複数層の有機化合物層が発光波長の光が定在波として存在しえる層厚であることを特徴とする請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項3】有機化合物層が、ホール注入輸送層／発光層／電子注入輸送層から構成されていることを特徴とする請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項4】発光層が局所的にドーピングされ、発光領域が100Å以下であることを特徴とする請求項1乃至3記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は発光性有機化合物からなる発光層を有し、電界印加により注入された荷電キャリヤー（電子とホール）の再結合により電気エネルギーを直接光エネルギーに変換でき、かつ光共振器構造であることにより、発光スペクトルの形状、発光ピーク位置の制御及び発光面からの光放射分布の制御を可能にする有機電界発光素子に関する。

【0002】

【従来技術】近年、情報機器の多様化及び省スペース化に伴い、CRTよりも低消費電力で空間占有面積の少ない平面表示素子へのニーズが高まっている。この様な平面表示素子としては液晶、プラズマディスプレイなどがあるが、特に最近は自己発光型で表示が鮮明な、また直流低電圧駆動が可能な有機電界発光素子への期待が高まっている。有機電界発光素子の素子構造としてはこれまで2層構造（陽極と陰極の間に、ホール注入輸送層と電子輸送性発光層が形成された構造（SH-A構造）（特開昭59-194393号公報, Appl. Phys. Lett. 51, 913 (1987)）、または、陽極と陰極の間にホール輸送性発光層と電子注入輸送層が形成された構造（SH-B構造）（U.S.P. No. 5085947、特開平2-25092号公報, Appl. Phys. Lett. 55, 1489 (1989)）、或は3層構造（陽極と陰極との間にホール注入輸送層と発光層と電子注入輸送層が形成された構造（DH構造）

（Appl. Phys. Lett. 57, 531 (1990)）の素子が報告されている。

【0003】上記陽極としては、AuやITO(indium-tin-oxide)などの様な仕事関数の大きな電極材料を用い、陰極としては、Ca, Mg, Al等及びそれらの合金等の仕事関数の小さな電極材料を用いる。また、今まで、上記ホール注入輸送層、発光層、電子注入輸送層に使用可能な材料として様々な有機化合物が報告されている。例えば、ホール注入輸送層としては芳香族3級アミンが、発光層材料としてはアルミニウムトリスオキシン（特開

昭59-194393号公報、特開昭63-295695号公報）、スチリルアミン誘導体、スチリルベンゼン誘導体等（特開平2-209988号公報）が、また、電子注入輸送層としては、オキサジアゾール誘導体等（日本化学会誌No. 11, p1540 (1991)）が報告されている。そしてこれらの材料を用い、素子構造及び構成有機材料の最適化を図ることにより初期時に1000cd/m²以上の高輝度発光、駆動電圧10V程度の素子が得られている。

10 【0004】また、これまでの有機電界発光素子の研究は発光効率の向上、エネルギー変換効率の向上等に焦点があてられてきた。さらに最近では、有機電界発光素子が超薄膜からなることに起因して発光特性が構成有機化合物層の膜厚と大きな関係を有することがわかり、発光スペクトルの制御及び素子の発光面からの発光分布の制御が有機電界発光素子において重要性であることが指摘されている。

【0005】斎藤らは、上記3種類の有機電界発光素子において、発光部分とMgAg陰極との距離を変化させ発光効率及び発光スペクトルの発光ピーク位置が発光部分と陰極間の距離に大きく依存することを指摘している。

（1990年秋期応用物理学会No. 28a-PB-11）さらに、斎藤らは、発光層にTb(acetylacetone)3を用い、DH構造を構成し、発光層と陰極の距離に依存して電界発光寿命（τ:life time）も変化することを指摘している。これらの現象は、MgAg陰極が光反射能を有するために発光部分から発生した光がMgAg陰極によって反射され光の干渉が生じることに起因する。有機超薄膜における、この様な金属反射ミラーによる光の干渉効果（励起分子と金属ミラーの相互作用）は1960年代からK. H. Drexhage及びR. R. Chanceらにより、実験及び理論の両面から詳細に検討がなされている（K. H. Drexhage, Progree in optics 12巻 p. 163 : Journal of Chemical Physics, Vol. 62, No. 6, p. 2245）。

【0006】この様に、光反射能を有するMgAg陰極を用いることにより、有機電界発光素子における発光特性を変化させることができる。しかしながら、光の干渉効果がMgAg陰極のみではその効果は小さく、新たな干渉機構が要望されている。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記の問題を解決するためになされたもので、発光スペクトルの形状、発光スペクトルの発光ピーク位置の制御、発光面からの発光分布の制御に著しく有効な有機電界発光素子を提供することを目的としてなされたものである。

【0008】

【課題を解決するための手段】即ち本発明による有機電界発光素子は、少なくとも陽極、1層または複数層の有機化合物層、陰極の順で構成されている有機電界発光素子において、前記陽極及び陰極が光反射能を有し、光共

振器構造を有することを特徴とする有機電界発光素子である。さらにいえば、陽極／発光層／陰極から構成される発光層単層素子、ホール注入輸送層と発光層とが陽極側から順に形成された2層構造、発光層と電子注入輸送層とが陽極側から順に形成された2層構造、ホール注入輸送層と発光層と電子注入輸送層とが陽極側から順に形成された3層構造、或は、ホール注入輸送層と発光層と電子注入輸送層（但、各層が少なくとも1つ以上の複数層から構成されている）とが陽極側から順に形成された多層構造の有機化合物層において、陽極と陰極の両方が光反射能を有し光共振器構造である場合、上記課題に対して有効であることを見いだし、本発明を完成するに至った。

*

$$\frac{2\pi}{\lambda} (2nd \cos \theta) + \phi A(\theta, \lambda) + \phi B(\theta, \lambda) = 2(m+1)\pi$$

（式中、 θ は出射光が膜面に対し垂直方向となす角度を、 m は1以上の整数を表わす。）

【0011】図2は定在波の模式図で、例えば式（1）を満たすように有機化合物層の膜厚と屈折率を調整した場合、 $m=1, 3$ の場合には有機化合物層の中央部に発光部を設定すればよいが、 $m=2$ の場合は有機化合物層の中央部が定在波の節となるので、中央部に発光部を設定したのでは強い指向性の光は取り出せない。そのためこの場合は、予め定在波の腹が存在する位置を計算し、発光層の挿入位置を決めなければならない。

【0012】以下に、本発明の電界発光素子を構成する電極材料について記す。陽極としては、ホール注入輸送層にホールを注入しやすい仕事関数の大きな電極材料が好ましく、かつ光反射能を有するものを用いる。具体的にはAu, Ag, Cu, Pt, Ni, Pd, Se, Te, Rh, Ir, Ge, Os, Ru, Cr, W, ITO (indium-tin-oxide), SnO₂, ZnO₂等を挙げることができる。さらに高い光反射能を得るために電極を2層以上から構成することも可能であり、これらは80%以上の光反射能を有することが望ましい。陰極としては、仕事関数が小さく電子注入輸送層に電子を注入しやすい性質をもつものが望ましい。具体的には、仕事関数の小さな銀、錫、鉛、カルシウム、マグネシウム、マンガン、インジウム、アルミニウム、或はこれらの合金が用いられる。さらに高い光反射能を得るために電極を2層以上から構成することも可能であり、これらは80%以上の光反射能を有することが望ましい。さらに、光反射能をより向上するためには各電極に接するように誘電体多層膜を形成することが好ましい。

【0013】以下に本発明における有機化合物層を構成する材料について記す。発光層には、固体において強い蛍光を有し500Å程度の薄膜においてち密な膜を形成する物質が好ましく、有機電界発光素子の発光層に用いられてきた従来公知の材料を用いることができる。例え

* 【0009】即ち、光反射能を有する陽極と陰極間に多層構造の有機層を有する電界発光素子において、この電界発光素子内で発光波長の光の定在波が存在できる条件を満たすように有機層の膜厚を制御すれば発光スペクトルを鋭くし、発光の光放射分布に指向性をもたせることが出来る。図1に示した光反射能を有する電極A及び電極Bで挟まれ、厚さdで光の屈折率がnの有機化合物層の場合、電極A及び電極Bで光が反射される際の位相変化角を $\phi A, \phi B$ とすると、この共振器内で波長 λ の光の定在波が立つ条件は下記式（数1）で与えられる。

【0010】

【数1】

10

20

30

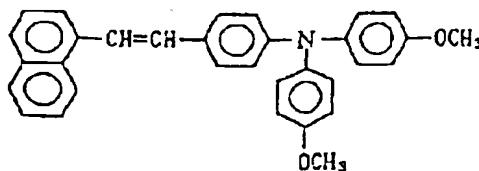
40

50

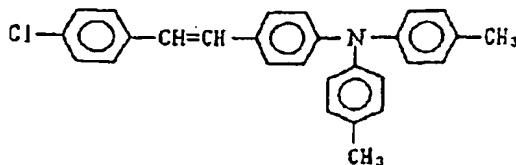
ば金属キレート化オキシソイド化合物（8-ヒドロキシキノリン金属錯体）（特開昭59-194393号公報、特開昭63-295695号公報）、1,4ジフェニルブタジエンおよびテトラフェニルブタジエンのようなブタジエン誘導体、クマリン誘導体、ベンズオキサソール誘導体、オキサジアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、スチリルアミン誘導体、ビススチリルベンゼン誘導体（特開平2-247277号公報）、トリスチリルベンゼン誘導体（特開平3-296595号公報）ビススチリルアントラセン誘導体（特開平3-163186号公報）、ペリノン誘導体、アミノピレン誘導体等があげられる。以下にこれらの発光層の材料の具体例を示す。

【0014】

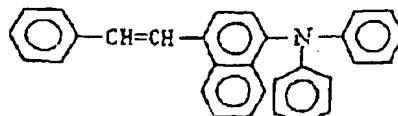
【化1】



【化2】

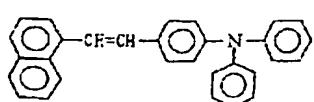


【化3】

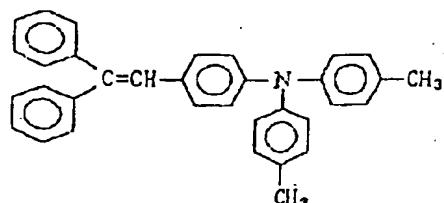


【化4】

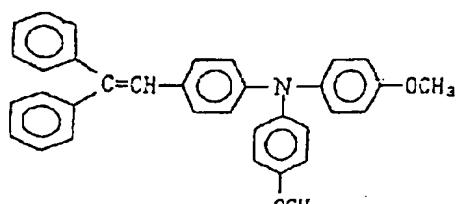
5



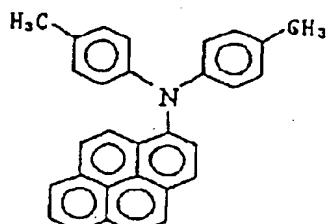
【化5】



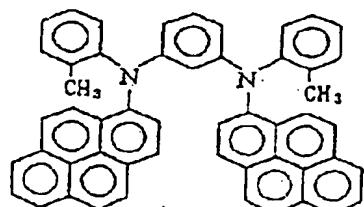
【化6】



【化7】

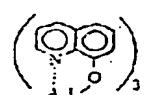


【化8】

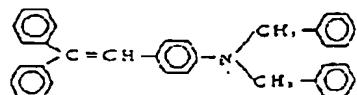


6

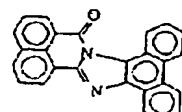
* 【化9】



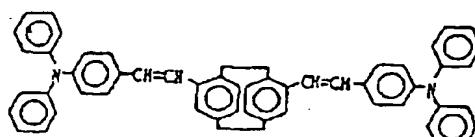
【化10】



10 【化11】



【化12】

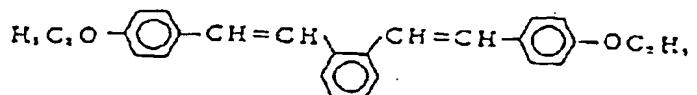


20

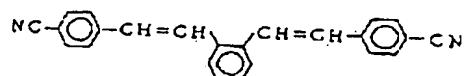
【化13】

30

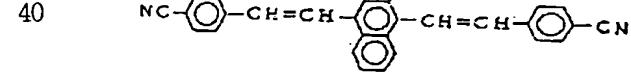
*



【化14】

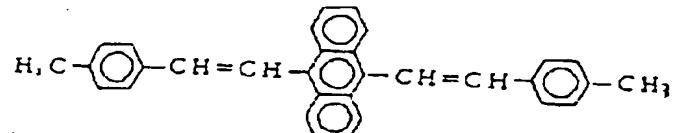


*



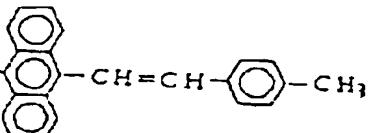
【化15】

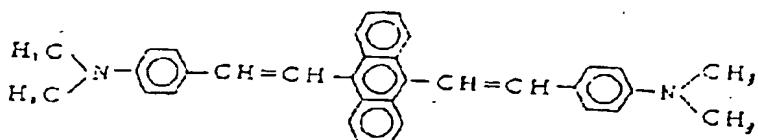
*



【化17】

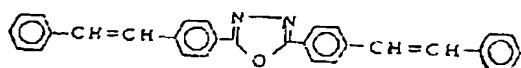
【化16】



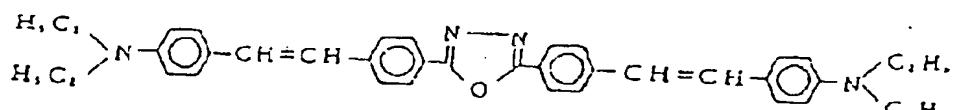


【化18】

* 【化19】



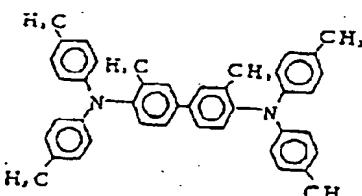
*



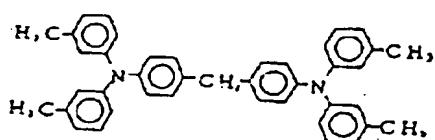
【0015】ホール注入輸送層材料としては、有機電界発光素子のホール注入輸送層に用いられてきた従来公知の材料をすべて用いることができるが、好ましくは、少なくとも2つの芳香族3級アミンを有する化合物で、より好ましくは芳香族3級アミンがモノアリールアミン、ジアリールアミン、トリアリールアミンである化合物である。そして代表的な芳香族3級アミンとしてはU.S.P. No. 4175960、U.S.P. No. 453950 7、特開昭63-264692号公報によって開示されている化合物があげられる。また、U.S.P. No. 4720432に開示されているポルフィリン誘導体(フタロシアニン類)も有用な化合物である。以下にこれらのホール注入輸送層の材料の具体例を示す。

【0016】

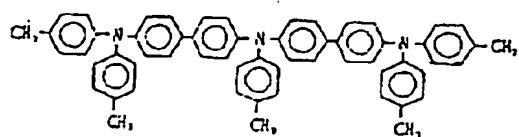
【化20】



【化21】

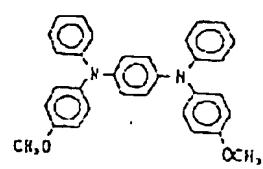
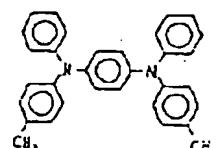


【化22】

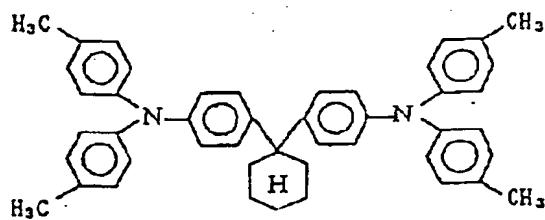


【化23】

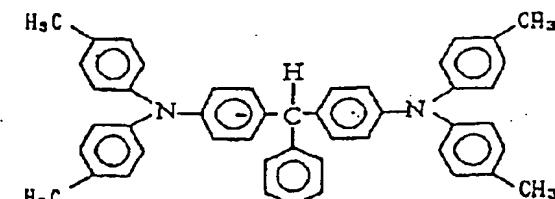
【化24】



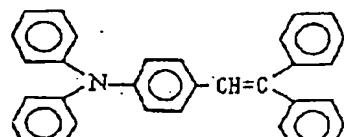
【化25】



【化26】

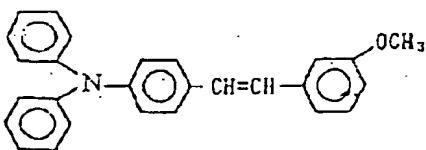


【化27】

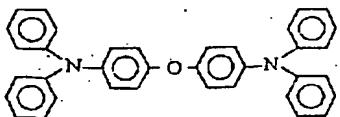


【化28】

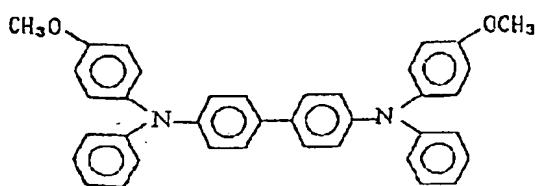
9



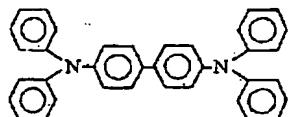
【化29】



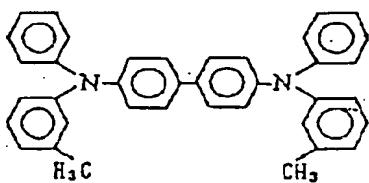
【化30】



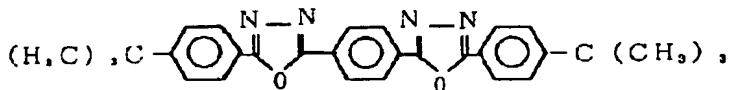
【化31】



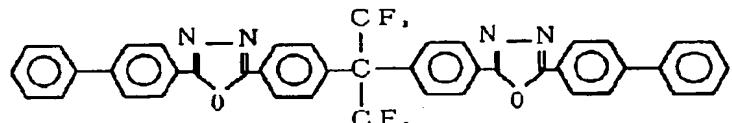
【化32】



【化37】



【化38】



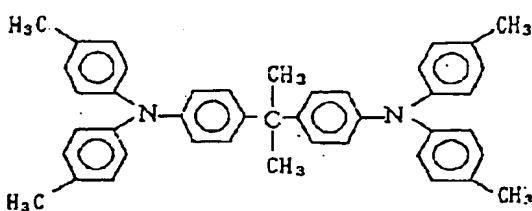
【0019】本発明における有機電界発光素子の有機化合物層は有機化合物を真空蒸着法等により蒸着することにより形成することができ、該層の層厚は有機化合物層全体で2μm以下であることが好ましく、より好ましくは0.01μm～0.5μmである。本発明の電界発光素子はこのように有機化合物層を形成し、更に陽極及び陰極で挟持することにより形成される。

【0020】以下、図面に沿って本発明の有機電界発光素子の構成についてさらに詳細に説明する。図3は本発

50

10

* 【化33】

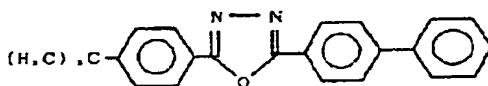


【0017】電子注入輸送層材料としては、有機電界発光素子の電子注入輸送層材料に用いられてきた従来公知の材料をすべて用いることができるが、好ましくはオキサジアゾール環を少なくとも1つ以上含む化合物である。代表的な有用なオキサジアゾール化合物は、App 1. Phys. Lett 55, 1489 (1989) 及び日本化学会誌1540 (1991) に開示されている。以下に有用なオキサジアゾール化合物の具体例を示す。

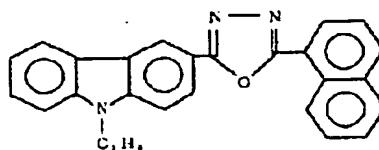
【0018】

【化34】

20

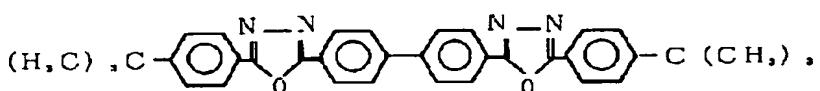


【化35】



【化36】

*



明の有機電界発光素子の代表的な例であって、基板上1に陽極2、発光層3a及び陰極4を順次設けたものである。図3に係わる有機電界発光素子は使用する有機化合物が単一でホール輸送性、電子輸送性、発光性の特性を有する場合あるいは各々の特性を有する化合物を混合して使用する場合に有用である。図4はホール輸送性化合物と電子輸送性化合物との組合せにより有機電界発光素子を形成したものである。この構成は有機化合物の好ましい特性を組み合わせるものであり、ホール輸送性ある

いは電子輸送性の優れた化合物を組み合わせることにより電極からのホール注入あるいは電子の注入を円滑に行い発光特性の優れた素子を得ようとするものである。このタイプの場合、組み合わせる有機化合物の電子的性質に応じてホール注入輸送層3b及び電子注入輸送層3cのいずれかもしくは両層が発光する。

【0021】図5はホール注入輸送層3b、発光層3a、電子注入輸送層3cから構成された有機電界発光素子であり、この場合、2つのキャリヤー輸送層が存在するために発光層に用いる有機化合物の対象範囲が極めて広くなるという利点がある。図6はホール注入輸送層3b、発光層3a、電子注入輸送層3cから構成された有機電界発光素子において各機能層が少なくとも1層以上から構成されている場合である。本発明における有機電界発光素子は、必要により図3、図4、図5、図6のような構成をとることができる。

【0022】さらに、上記の有機電界発光素子において、発光層が100Åの狭い領域に限定されている場合、及び発光層の一部が局所的にドーピングされており、発光領域が100Å以下に限定されている場合、発光スペクトルの形状、発光ピーク位置の制御及び発光面からの光放射分布等の特性変化を強く引きだすことが可能となる。ドーピングに用いるドーパントとしては、溶液状態において、強い蛍光強度を有し、発光層材料と錯体（電荷移動錯体、*exciplex*等）を形成しない材料が好ましい。また、発光層内におけるドーパント濃度としては、0.01mole%～1mole%程度が好ましい。

【0023】本発明の有機電界発光素子は発光層に電気的にバイアスを印加し発光させるものであるが、わずかなピンホールによって短絡をおこし、素子として機能しなくなる場合もあるので、有機化合物層の形成には皮膜形成性に優れた化合物を併用することが望ましい。さらにこのような皮膜形成性に優れた化合物とポリマー結合剤を組み合わせて発光層を形成することもできる。この場合に使用できるポリマー結合剤としては、ポリスチレン、ポリビニルトルエン、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、ポリエステル、ポリカーボネイト、ポリアミド等を挙げることができる。また、本発明においては、このようにして得られた有機電界発光素子の安定性の向上、特に大気中の水分、酸素に対する保護のために、別に保護層を設けたり、素子全体をセル中に入れ乾燥剤等を封入、もしくは、真空セル中に封入してもよい。

【0024】

【実施例】以下実施例に基づいて、本発明をより具体的に説明する。

【0025】【実施例1】光学研磨したガラス基板を順次、中性洗剤、アセトン、イソプロピルアルコールで超音波洗浄した。そして煮沸したイソプロピルアルコール

にガラス基板を5分間浸漬し、自然乾燥した。真空蒸着装置に基板をセットし、10⁻⁶torrの真空下において、アルミニウムを500Å、Auを300Å蒸着し陽極を形成した。次に、ホール注入輸送層として「化25」を10⁻⁶torrの真空下でアルミナるつぼを加熱することにより1600Å蒸着した。さらに、発光層として「化9」を1000Å蒸着した。最後に10:1の原子比のMgAg電極を2000Å蒸着した。この場合ホール注入輸送層及び発光層の光学膜厚は発光波長のλ/4に対応している。このようにして作製した電界発光素子は、印加電圧25Vにおいて25mA/cm²の電流が観測され、発光輝度180cd/m²を示した。この時の発光スペクトルを図7に示す。この場合発光ピークは530nmに位置し、半値半幅δは47nmであり、従来のITO陽極を用いたものと比べ（図8）、著しく発光スペクトルの形状が鋭くなっている。本発明の構成にすることにより1つのミラーでは困難であった発光スペクトルの形状変化が可能となる。

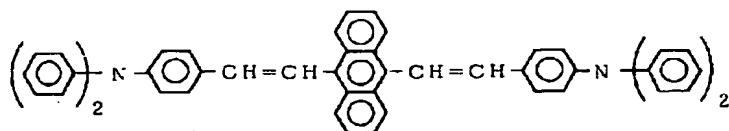
【0026】【比較例1】実施例1と同様に有機電界発光素子を作製した。ただし、陽極にはAl-Au積層電極に代わりITO陽極（膜厚2000Å、シート抵抗2Ω/□）を用いた。この場合の発光スペクトルを図8に示す。発光スペクトルは511nmを中心とし、半値半幅δ=86nmのプロードな発光を示した。

【0027】【実施例2】実施例1と同様に有機電界発光素子を作製した。ただし、ホール注入輸送層の膜厚を1300Åに、発光層の膜厚を1000Åとした。この場合の発光スペクトルを図9に示す。発光スペクトルは489nmを中心とし、半値半幅δは50nmであり、有機化合物層の膜厚を制御することにより、発光ピークをシフトすることが可能である。

【0028】【実施例3】実施例1と同様にAl-Au陽極を形成した後、ホール注入輸送層として「化32」を1350Å、発光層として「化1」を50Å、電子注入輸送層として「化34」を1080Å蒸着した。最後に陰極として原子比10:1のMgAg電極を形成し、DH構造の電界発光素子を形成した。この場合の発光スペクトルを図10に示す。発光スペクトルは550nmを中心とし半値半幅δは30nmであった。この様に、発光サイトを非常に狭い範囲に限定することにより、極めて鋭い発光スペクトルを得ることが可能となる。

【0029】【実施例4】実施例1と同様に陽極を形成した後、ホール注入輸送層として「化32」を940Å蒸着した。さらに、発光層材料として「化9」を880Å蒸着した。ただし、発光層形成時にドーパント材料「化39」を2mol%になるように発光層中に共蒸着により形成した。さらに陰極としてMgAg合金を実施例1と同様に形成した。この電界発光素子を発光させたところ、600nmを発光ピークとした発光が観測され、半値半幅δ=35nmの鋭い発光スペクトルであった。

【0030】



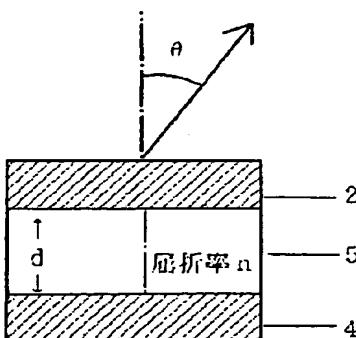
【0031】 [実施例5] 実施例1と同様に基板処理を行い、Ag電極(350Å)を蒸着により形成した後、ホール注入輸送層として「化32」を1900Å、発光層として「化1」を150Å、電子注入輸送層として「化37」を1950Å蒸着した。最後に陰極としてMgAg電極を2500Å形成し、DH構造の電界発光素子を形成した。この素子で素子面に垂直な方向で電界発光スペクトルを観察したところ、図11の破線のように、極大波長は505nmで、半値半幅は12nmであった。また、分光器を通した480nmおよび500nmの単色光としての発光強度の発光方位依存性を観測したところ、図12に実線で示すように、(a) 発光波長500nmでは膜面に垂直方向に鋭い強度発光指向性をもった発光が、(b) 480nmでは垂直方向から30度傾いた方向に指向性があることがわかった。

【0032】 [比較例2] 陽極基板にITOを用いた以外は実施例5と同様に電界発光素子を作製した。この場合の膜面に垂直方向から観測した発光スペクトルを図11の実線で示した。発光スペクトルの極大波長は510nmであり、スペクトルの半値半幅は32nmで、実施例5に比較して2.7倍程度広かった。また実施例5の条件で発光強度の発光方位依存性を観測したところ、図12の点線のようになり、片側の陰極だけでは光反射能があるため、緩やかな方位依存性は存在するものの、実施例5の場合と比較すると発光の指向性は小さいことがわかった。

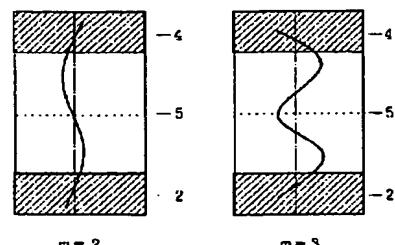
【0033】

【発明の効果】 本発明によれば、発光スペクトルの形状、発光スペクトルの発光ピーク位置の制御、発光面からの発光分布の制御に著しく有効な有機電界発光素子を得ることが出来る。

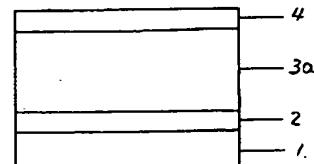
【図1】



【図2】



【図3】



【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明に係わる有機電界発光素子の模式断面図である。

10 【図2】 本発明に係わる有機電界発光素子における定在波の模式図である。

【図3】 本発明に係わる有機電界発光素子の模式断面図である。

【図4】 本発明に係わる有機電界発光素子の模式断面図である。

【図5】 本発明に係わる有機電界発光素子の模式断面図である。

【図6】 本発明に係わる有機電界発光素子の模式断面図である。

【図7】 実施例1における電界発光スペクトルである。

【図8】 比較例1における電界発光スペクトルである。

【図9】 実施例2における電界発光スペクトルである。

【図10】 実施例3における電界発光スペクトルである。

【図11】 実施例5及び比較例2における電界発光角度分布である。

【図12】 実施例5及び比較例2における発光方位依存性である。

【符号の説明】

1 基板

2 陽極

3 a 発光層

3 b ホール注入輸送層

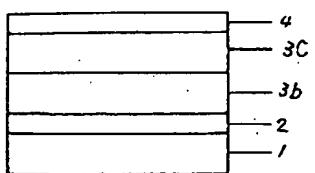
3 c 電子注入輸送層

4 陰極

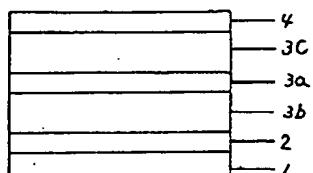
5 有機化合物層

30

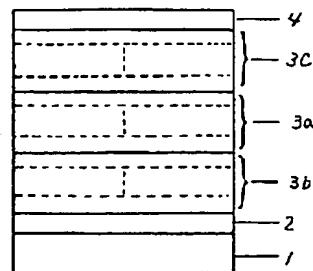
【図4】



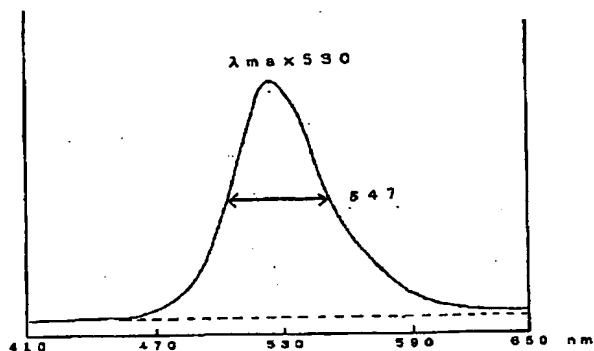
【図5】



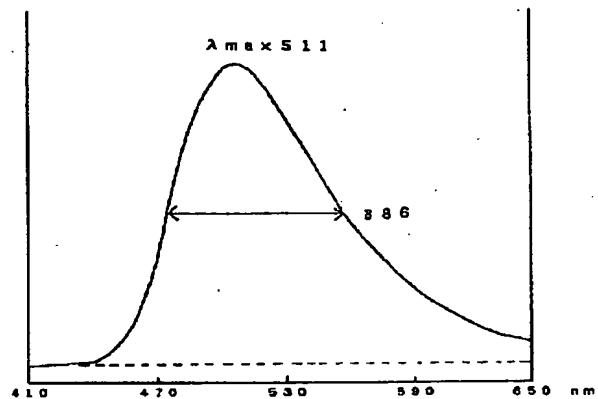
【図6】



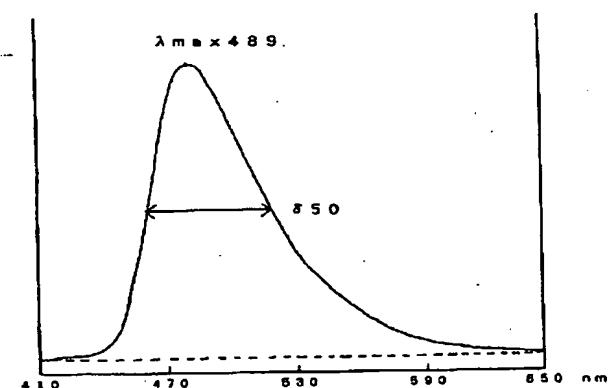
【図7】



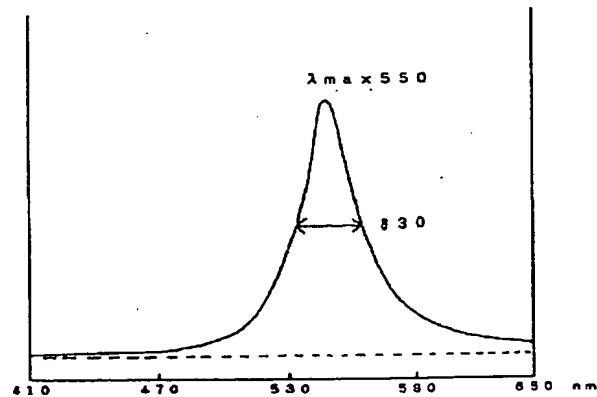
【図8】



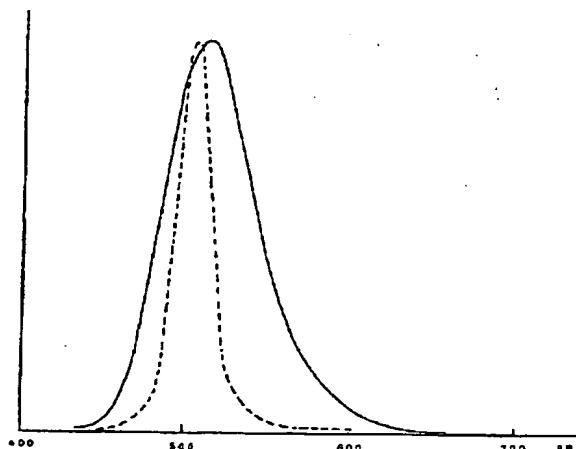
λmax 489.



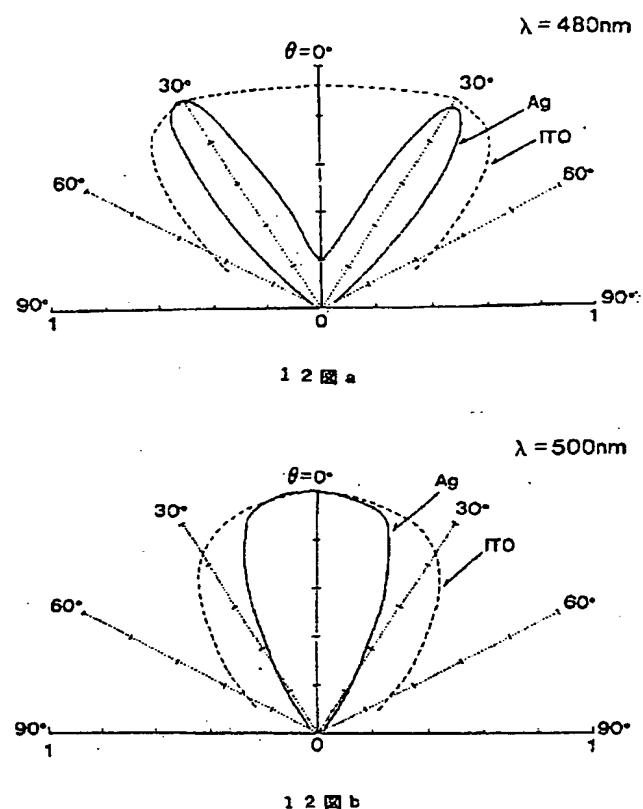
【図10】



【図11】



【図12】



【手続補正書】

【提出日】平成6年1月27日

【手続補正1】

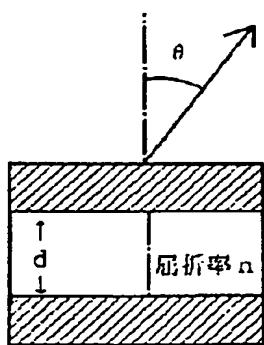
【補正対象書類名】図面

* 【補正対象項目名】全図

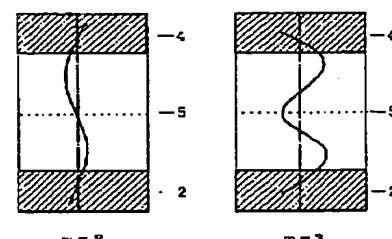
【補正方法】変更

* 【補正内容】

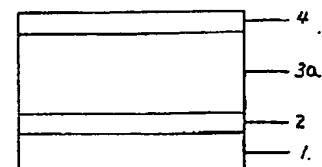
【図1】



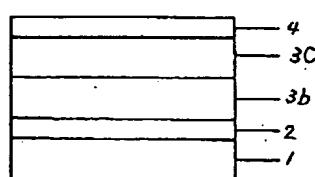
【図2】



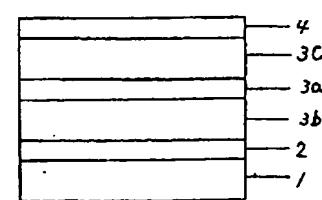
【図3】



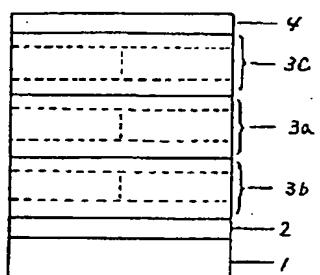
【図4】



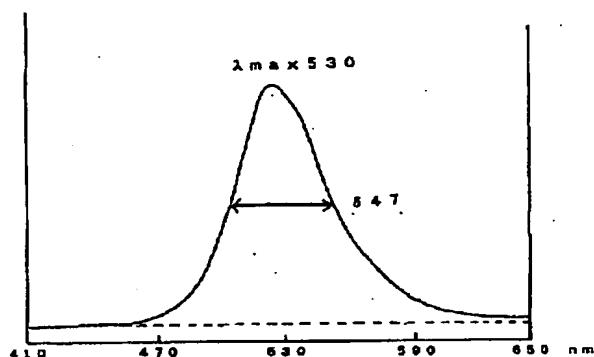
【図5】



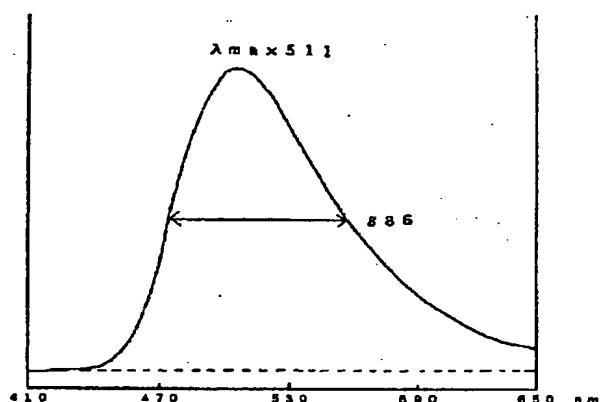
【図6】



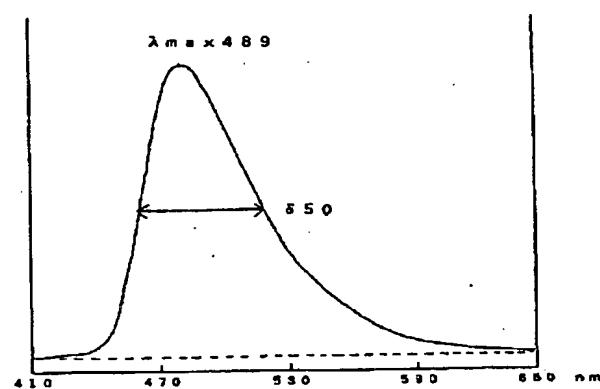
【図7】



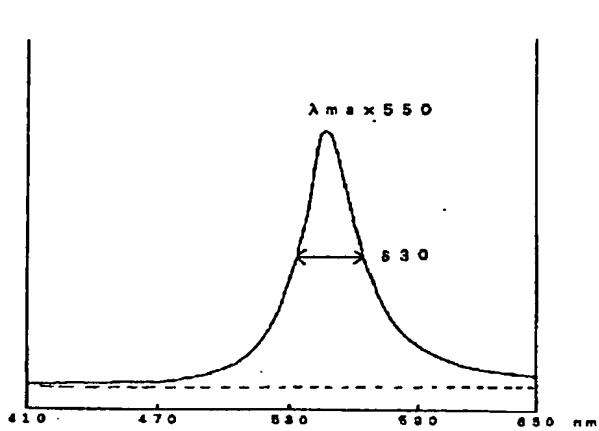
【図8】



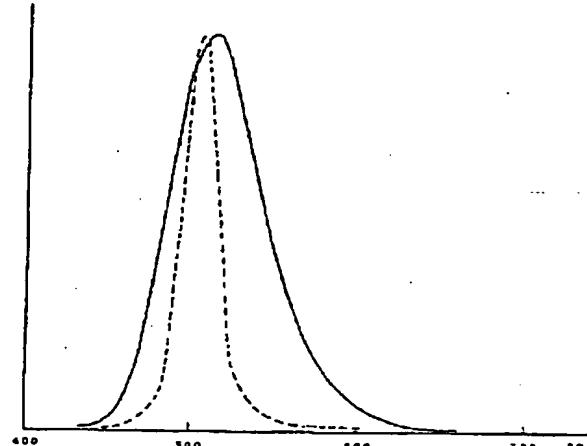
【図9】



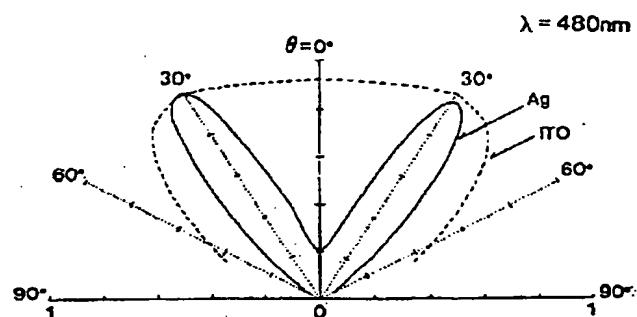
【図10】



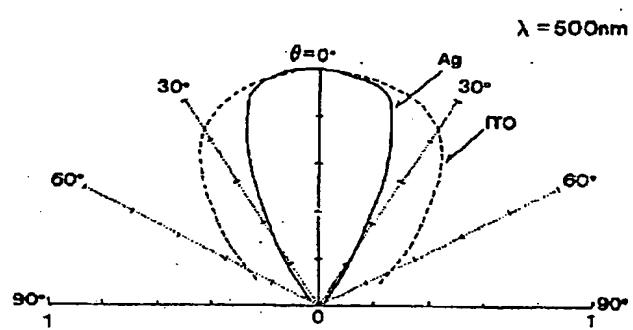
【図11】



【図12】



12図a



12図b